

DOCKET NO.: 260613US0PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Kouichi KODOI, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP03/05442

INTERNATIONAL FILING DATE: April 28, 2003

FOR: HALOGENOACETOXYADAMANTANE DERIVATIVES AND PROCESS FOR PRODUCTION THEREOF

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313


Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Japan	2002-136183	10 May 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP03/05442. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

OHTANI, Tamotsu
Bridgestone Toranomon BLDG.6F.
25-2, Toranomon 3-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0001
Japan

Date of mailing (day/month/year) 08 August 2003 (08.08.03)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference FI-1803	
International application No. PCT/JP03/05442	International filing date (day/month/year) 28 April 2003 (28.04.03)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 10 May 2002 (10.05.02)
Applicant IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
10 May 2002 (10.05.02)	2002-136183	JP	20 June 2003 (20.06.03)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 338.90.90

Authorized officer

Farid ABBOU

Telephone No. (41-22) 338 8169

28.04.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 5月10日

出願番号

Application Number:

特願2002-136183

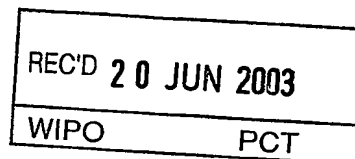
[ST.10/C]:

[JP2002-136183]

出願人

Applicant(s):

出光石油化学株式会社

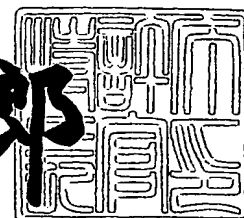


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 6月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3042046

【書類名】 特許願

【整理番号】 IP3902

【提出日】 平成14年 5月10日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C07C 13/615

【発明の名称】 ハロゲンアセトキシアダマンタン誘導体及びその製造方法

【請求項の数】 5

【発明者】

 【住所又は居所】 山口県徳山市新宮町1番1号

 【氏名】 小土井 浩一

【発明者】

 【住所又は居所】 山口県徳山市新宮町1番1号

 【氏名】 田中 慎司

【発明者】

 【住所又は居所】 山口県徳山市新宮町1番1号

 【氏名】 吉留 俊英

【特許出願人】

 【識別番号】 000183657

 【氏名又は名称】 出光石油化学株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100078732

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 大谷 保

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 003171

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0000936

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体及びその製造方法

【請求項1】 アダマンタン骨格にハロゲノアセトキシ基を有することを特徴とするハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体。

【請求項2】 ハロゲノアセトキシ基が、クロロアセトキシ基又はブromoアセトキシ基である請求項1記載のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体。

【請求項3】 2-ハロゲノアセトキシアダマンタン、2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタン、1-ハロゲノアセトキシアダマンタン、1-ハロゲノアセトキシ-3-ヒドロキシアダマンタン、1, 3-ビス（ハロゲノアセトキシ）アダマンタン又は1-ハロゲノアセトキシパーフルオロアダマンタンである請求項1又は2記載のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体。

【請求項4】 2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタンである請求項3記載のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体。

【請求項5】 アダマンタン骨格のヒドロキシル基に、直接ハロゲノ酢酸ハライドを反応させるか、又は該ヒドロキシル基にリチオ化剤を作用させて、リチウムオキシ基に誘導したのち、ハロゲノ酢酸ハライドを反応させ、ハロゲノアセトキシ基を導入することを特徴とするハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、新規なハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体及びその製造方法に関し、さらに詳しくは、本発明は、フォトリソグラフィ分野におけるフォトレジスト用樹脂の改質剤やドライエッチング耐性向上剤、農医薬中間体、その他各種工業製品用などとして有用な新規なハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体、及びこのものを効率よく製造する方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

アダマンタンは、シクロヘキサン環が4個、カゴ形に縮合した構造を有し、対

称性が高く、安定な化合物であり、その誘導体は、特異な機能を示すことから、医薬品原料や高機能性工業材料の原料などとして有用であることが知られている。例えば光学特性や耐熱性などを有することから、光ディスク基板、光ファイバーあるいはレンズなどに用いることが試みられている（特開平6-305044号公報、特開平9-302077号公報）。

また、アダマンタンエステル類を、その酸感応性、ドライエッチング耐性、紫外線透過性などを利用して、フォトレジスト用樹脂原料として、使用することが試みられている（特開平4-39665号公報）。

【0003】

一方、近年、半導体素子の微細化が進むに伴い、その製造におけるリソグラフィ工程において、さらなる微細化が要求されており、したがって、KrF、ArFあるいはF₂エキシマレーザー光などの短波長の照射光に対応したフォトレジスト材料を用いて、微細パターンを形成させる方法が種々検討されている。そして、前記エキシマレーザー光などの短波長の照射光に対応できる新しいフォトレジスト材料の出現が望まれていた。

ところで、アダマンタノールとハロゲノ酢酸とのエステル化合物であるハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、分子中にアダマンタン骨格を有し、フォトレジスト用樹脂の改質剤などや、農医薬中間体などとして有用であることが考えられるが、これまで知られていない化合物である。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、このような状況下で、フォトリソグラフィ分野におけるフォトレジスト用樹脂の改質剤やドライエッチング耐性向上剤、農医薬中間体、その他各種工業製品用などとして有用な新規なアダマンタン誘導体を提供することを目的とするものである。

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記用途に有用な新規なアダマンタン誘導体を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、アダマンタン骨格にハロゲノアセトキシ基が導入されてなるハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、文献未載の新規な化合物であり、そ

の目的に適合し得ること、そして該化合物は特定のプロセスにより、効率よく製造し得ることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

【0005】

すなわち、本発明は、

- (1) アダマンタン骨格にハロゲノアセトキシ基を有することを特徴とする ハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体、
 - (2) ハロゲノアセトキシ基が、クロロアセトキシ基又はブromoアセトキシ基ある上記 (1) のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体、
 - (3) 2-ハロゲノアセトキシアダマンタン、2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタン、1-ハロゲノアセトキシアダマンタン、1-ハロゲノアセトキシ-3-ヒドロキシアダマンタン、1,3-ビス (ハロゲノアセトキシ) アダマンタン又は1-ハロゲノアセトキシパーフルオロアダマンタンである上記 (1)、(2) のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体、
 - (4) 2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタンである上記 (3) のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体、及び
 - (5) アダマンタン骨格のヒドロキシル基にハロゲノ酢酸ハライドを反応させるか、又は該ヒドロキシル基にリチオ化剤を作用させてリチウムオキシ基に誘導したのち、ハロゲノ酢酸ハライドを反応させ、ハロゲノアセトキシ基を導入することを特徴とするハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体の製造方法、
- を提供するものである。

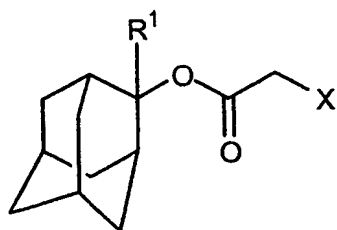
【0006】

【発明の実施の形態】

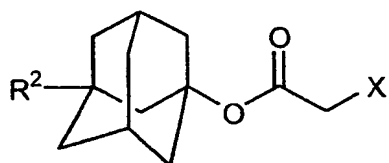
本発明のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、アダマンタン骨格に、ハロゲノアセトキシ基を有する文献未載の新規な化合物であり、例えば一般式 (I-a)、(I-b)、(I-c)

【0007】

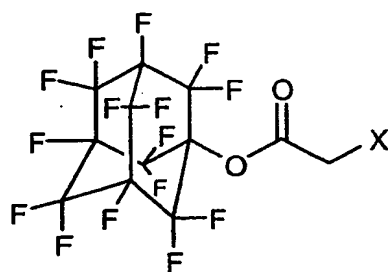
【化 1】



… (I - a)



… (I - b)



… (I - c)

(式中、 R^1 は水素原子又は炭素数1～10のアルキル基、 R^2 は水素原子、ヒドロキシル基又は XCH_2COO- 基、 X はハロゲン原子を示す。)

で表される化合物を挙げることができる。

前記一般式 (I - a) において、 R^1 のうちの炭素数1～10のアルキル基は、直鎖状及び分岐鎖状のいずれであってもよく、特に炭素数1～5の低級アルキル基が好ましい。このアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ペンチル基などが挙げられる。

【0008】

また、前記一般式 (I - a)、(I - b)、(I - c) において、 X で表されるハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられるが、これらの中で塩素及び臭素が好ましい。

前記一般式 (I-a) で表されるハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、2-ハロゲノアセトキシアダマンタン又は2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタンであり、一般式 (I-b) で表されるハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、1-ハロゲノアセトキシアダマンタン、1-ハロゲノアセトキシ-3-ヒドロキシアダマンタン又は1, 3-ビス (ハロゲノアセトキシ) アダマンタンであり、一般式 (I-c) で表されるハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、1-ハロゲノアセトキシパーフルオロアダマンタンである。本発明においては、これらのハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体の中で、2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタンを好ましく挙げることができる。この2-アルキル-2-ハロゲノアセトキシアダマンタンの具体例としては、2-クロロアセトキシ-2-メチルアダマンタン及び2-ブロモアセトキシ-2-メチルアダマンタンなどが挙げられる。

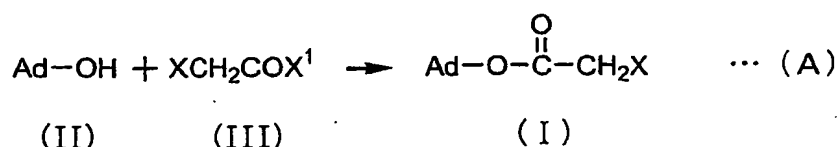
【0009】

前記ハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、以下に示す本発明の方法により、効率よく製造することができる。

本発明のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体の製造方法においては、二つの態様、すなわち (1) アダマンタン骨格のヒドロキシル基にハロゲノ酢酸ハライドを反応させる方法、及び (2) アダマンタン骨格のヒドロキシル基にリチオ化剤を作用させ、リチウムオキシ基に誘導したのち、ハロゲノ酢酸ハライドを反応させる方法がある。

前記 (1) の方法においては、例えば反応式 (A)

【化2】



(式中、Adは置換基を有する若しくは有しないアダマンタン環、 X^1 はハロゲン原子を示し、Xは前記と同じである。)

に従って、アダマンタノール類 (II) とハロゲノ酢酸ハライド (III) とをエステ

ル化反応させることにより、目的のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体 (I) が得られる。なお、アダマンタノール類 (II) が、分子中に複数のヒドロキシル基を有する場合には、そのヒドロキシル基の一部又は全部に、ハロゲノ酢酸ハライド (III) を反応させることができる。

この反応において、原料の一つとして用いられるアダマンタノール類 (II) としては、例えば前記一般式 (I-a) で表される化合物の原料として、2-アダマンタノール、2-アルキル-2-アダマンタノール、一般式 (I-b) で表される化合物の原料として、1-アダマンタノール、1,3-アダマンタンジオール、一般式 (I-c) で表される化合物の原料として、パーフルオロ-1-アダマンタノールなどを挙げることができる。

【0010】

もう一つの原料として、用いられるハロゲノ酢酸ハライド (III) としては、例えばモノクロロ酢酸クロリド、モノクロロ酢酸フルオリド、モノクロロ酢酸ブロミド、モノブromo酢酸クロリド、モノブromo酢酸フルオリド、モノブromo酢酸ブロミドなどが挙げられる。

この反応は、溶媒の存在下又は非存在下に、塩基触媒を用いて行うことができる。該塩基触媒としては、例えばトリメチルアミン、トリエチルアミン、ピリジン、N, N-ジメチルアミノピリジン、N, N-ジメチルアニリンなどの有機塩基が好ましく、これらは一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。また、溶媒を用いる場合には、該溶媒としては、例えばジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1, 2-ジクロロエタンなどのハロゲン化炭化水素系溶媒、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル系溶媒、ヘキサン、ペプタン、オクタンなどの脂肪族炭化水素系溶媒、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒等が挙げられる。これらの溶媒は、一種を単独で用いてもよく、二種以上を混合して用いてもよい。

【0011】

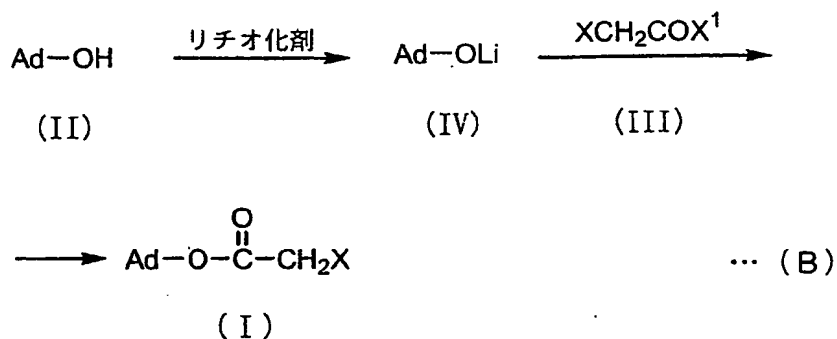
反応温度は、通常-78~100℃、好ましくは-78℃~室温の範囲で選定される。また、反応圧力は、通常0.1~10MPa (G) の範囲で選定される。反応時間は、反応温度などの条件によって左右され、一概に決めることはでき

ないが、通常1時間～10日、好ましくは1時間～3日程度である。溶媒を用いる場合の原料濃度としては、飽和溶解度以下であればよく、特に制限はないが、0.5～1.0モル／リットル程度が好ましい。

一方、前記(2)の方法においては、例えば反応式(B)

【0012】

【化3】



(式中、Ad、X及びX¹は前記と同じである。)

に従って、アダマンタノール類(II)にリチオ化剤を作用させて、リチウムアダマンチルオキサイド類(IV)に誘導したのち、ハロゲノ酢酸ハライド(III)を反応させることにより、目的のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導體(I)が得られる。なお、アダマンタノール類(II)が、分子中に複数のヒドロキシル基を有する場合には、そのヒドロキシル基の一部又は全部に、リチオ化剤を作用させ、さらにハロゲノ酢酸ハライド(III)を反応させることができる。

この反応において、原料の一つとして用いられるアダマンタノール類(II)としては、前記(1)の方法において説明したとおりである。これらに対応するリチウムアダマンチルオキサイド類(IV)としては、リチウム2-アダマンチルオキサイド、リチウム2-アルキル-2-アダマンチルオキサイド、リチウム1-アダマンチルオキサイド、ジリチウム1,3-アダマンチルジオキサイド、リチウムパーフルオロアダマンチルオキサイドなどが挙げられる。また、リチオ化剤としては、例えばリチウム金属、n-ブチルリチウム、sec-ブチルリチウム、tert-ブチルリチウムなどが挙げられる。

【0013】

また、もう一つの原料として用いられるハロゲノ酢酸ハライド (III) としては、前記 (1) の方法で説明したとおりである。

リチウムアダマンチルオキシサイド類 (IV) とハロゲノ酢酸ハライド (III) との反応は、溶媒の存在下に行われる。該溶媒としては、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル系溶媒、ヘキサン、ペプタン、オクタンなどの脂肪族炭化水素系溶媒、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒等が挙げられる。これらの溶媒は、一種を単独で用いてもよく、二種以上を混合して用いてもよい。

反応温度は、通常 $-78 \sim 100^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $-78^{\circ}\text{C} \sim$ 室温の範囲で選定される。また、反応圧力は、通常 $0.1 \sim 1.0 \text{ MPa (G)}$ の範囲で選定される。反応時間は、反応温度などの条件によって左右され、一概に決めることはできないが、通常 1 時間 \sim 10 日、好ましくは 1 時間 \sim 3 日程度である。原料濃度としては、飽和溶解度以下であればよく、特に制限はないが、 $0.5 \sim 1.0$ モル / リットル程度が好ましい。

【0014】

このようにして、本発明のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体を効率よく製造することができる。

得られた化合物の同定は、ガスクロマトグラフィー (GC)、液体クロマトグラフィー (LC)、ガスクロマトグラフィー質量分析 (GC-MS)、核磁気共鳴分光法 (NMR)、赤外分光法 (IR)、融点測定装置などを用いて行うことができる。

【0015】

【実施例】

次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。なお、仕込みから後処理及び保管まで、全ての操作は窒素気流下で行い、水分の漏れ込みを防止した。

実施例 1 2-クロロアセトキシ-2-メチルアダマンタンの製造

三方コックを付けた 100 ミリリットル容器に、2-メチル-2-アダマンタ

ノール 4.67 g (28.1 ミリモル) とピリジン 2.83 ミリリットル (35.0 ミリモル) を入れ、さらに乾燥テトラヒドロフラン 30 ミリリットルを加えて溶解させた。次いで、この溶液に、氷冷下でクロロ酢酸クロリド 4.42 g (39.2 ミリモル) を含むテトラヒドロフラン溶液を、キャタラーを用いて約 15 分間かけて滴下した。さらに、テトラヒドロフラン 10 ミリリットルでこの容器に残存したクロロ酢酸クロリドを洗い流し込んだ。室温にて約 24 時間反応させたのち、反応液に水 300 ミリリットルを添加して、反応を終了させた。

次に、得られた反応混合液を 3 回水洗後、ジエチルエーテル 100 ミリリットルで 3 回抽出し、抽出液を無水硫酸ナトリウムで乾燥させ、次いで濃縮したのち、カラム (シリカを充填し、展開液として、ヘキサン : ジエチルエーテル = 容量比 10 : 1 を使用) により 2-クロロアセトキシ-2-メチルアダマンタンの白色固体 5.89 g (20.5 ミリモル) を取り出した。収率 72.8%

分光データを以下に示す。

・核磁気共鳴分光法 (NMR) : CDCl_3

^1H -NMR (270 MHz) : 1.57-2.31 (m, 12 H)、1.65 (s, 3 H)、4.02 (s, 2 H)

^{13}C -NMR (68 MHz) : 22.37、26.62、27.30、32.97、34.56、36.18、38.06、41.95、89.82、165.69

【0016】

実施例 2 2-ブロモアセトキシ-2-メチルアダマンタンの製造

三方コックを付けた 100 ミリリットル容器に、2-メチル-2-アダマンタノール 2.51 g (15.1 ミリモル) とピリジン 1.62 ミリリットル (20.0 ミリモル) を入れ、さらに乾燥テトラヒドロフラン 30 ミリリットルを加えて溶解させた。次いで、この溶液に、氷冷下でブロモ酢酸ブロミド 6.01 g (30.2 ミリモル) を含むテトラヒドロフラン溶液を、キャタラーを用いて約 15 分間かけて滴下した。さらに、テトラヒドロフラン 10 ミリリットルでこの容器に残存したブロモ酢酸ブロミドを洗い流し込んだ。室温にて約 24 時間反応させたのち、反応液に水 300 ミリリットルを添加して、反応を終了させた。

次に、得られた反応混合液を3回水洗後、ジエチルエーテル100ミリリットルで3回抽出し、抽出液を無水硫酸ナトリウムで乾燥させ、次いで濃縮したのち、カラム（シリカを充填し、展開液として、ヘキサン：ジエチルエーテル＝容量比10：1を使用）により、2-ブロモアセトキシ-2-メチルアダマンタンの薄黄色固体0.61g（2.12ミリモル）を取り出した。収率14%

分光データを以下に示す。

・核磁気共鳴分光法（NMR）：CDCl₃

¹H-NMR（270MHz）：1.55-2.30（m、12H）、1.63（s、3H）、3.80（s、2H）

¹³C-NMR（68MHz）：21.97、26.49、26.99、32.77、34.41、35.99、37.92、65.03、89.28、165.32、

【発明の効果】

本発明のハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体は、新規な化合物であって、例えばフォトリソグラフィ分野におけるフォトレジスト用樹脂の改質剤やドライエッチング耐性向上剤、農医薬中間体、その他各種工業製品用などとして有用である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 フォトリソグラフィ分野におけるフォトレジスト用樹脂の改質剤やドライエッチング耐性向上剤、農医薬中間体、その他各種工業製品用などとして有用な新規なアダマンタン誘導体、及びその製造方法を提供すること。

【解決手段】 アダマンタン骨格にハロゲノアセトキシ基を有するハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体、及びアダマンタン骨格のヒドロキシル基にハロゲノ酢酸ハライドを反応させるか、又は該ヒドロキシル基にリチオ化剤を作用させて、リチウムオキシ基に誘導したのち、ハロゲノ酢酸ハライドを反応させ、ハロゲノアセトキシ基を導入するハロゲノアセトキシアダマンタン誘導体の製造方法である。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000183657]

1. 変更年月日

2000年 6月30日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都墨田区横網一丁目6番1号

氏 名

出光石油化学株式会社